

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-002430

(43)Date of publication of application : 09.01.2001

(51)Int.Cl.

C03B 20/00
C30B 15/10

(21)Application number : 11-172796

(71)Applicant : TOSHIBA CERAMICS CO LTD

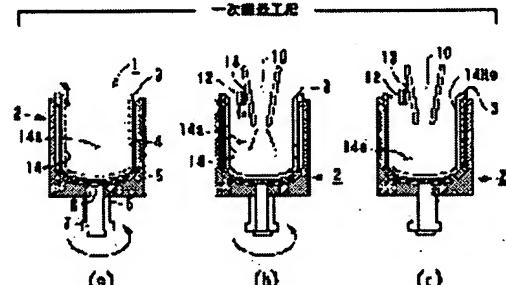
(22)Date of filing : 18.06.1999

(72)Inventor : HONMA HIROYUKI
KIMURA MICHIRO
OBATA NAOYUKI

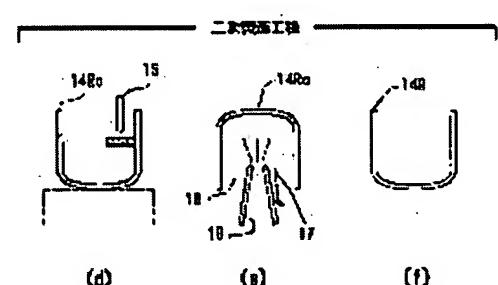
(54) PRODUCTION OF QUARTZ GLASS CRUCIBLE FOR PULLING UP SILICON SINGLE CRYSTAL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method for producing a quartz glass crucible for pulling up a silicon single crystal, whose inner surface is free from residual air bubbles and further substantially free from the nucleus of the air bubble, which is not detected by the visual observation or a micrograph level, but becomes a primary factor for forming an air bubble in the vicinity of the inner surface when it is used, and is smooth and by which high DF rate can be obtained.



SOLUTION: The quartz glass crucible for pulling up a silicon single crystal is obtained by feeding a powdery quartz raw material into a rotating mold, then forming a formed body 14 having a crucible shape, arc melting the formed body 14 to obtain a quartz glass crucible 14Ro, further mechanically grinding the whole inner surface of the quartz glass crucible 14Ro and re-melting the inner surface by arc melting 18 or high frequency plasma flame melting.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 07.09.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3672460
[Date of registration] 28.04.2005
[Number of appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2001-2430

(P2001-2430A)

(43)公開日 平成13年1月9日(2001.1.9)

(51)Int.Cl.
C 03 B 20/00
C 30 B 15/10

識別記号

F I
C 03 B 20/00
C 30 B 15/10

マークト(参考)
H 4 G 0 1 4
A 4 G 0 7 7

審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全 6 頁)

(21)出願番号 特願平11-172796

(22)出願日 平成11年6月18日(1999.6.18)

(71)出願人 000221122

東芝セラミックス株式会社
東京都新宿区西新宿七丁目5番25号

(72)発明者 本間 浩幸

山形県西置賜郡小国町大字小国町378番地
東芝セラミックス株式会社小国製造所内

(72)発明者 木村 道男

山形県西置賜郡小国町大字小国町378番地
東芝セラミックス株式会社小国製造所内

(74)代理人 100078765

弁理士 波多野 久 (外1名)

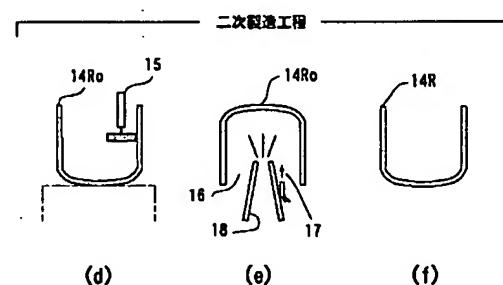
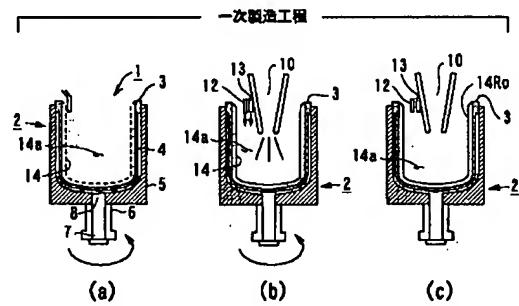
最終頁に続く

(54)【発明の名称】シリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法

(57)【要約】

【課題】石英ガラスルツボの内表面の残留気泡を皆無にし、かつ目視や顕微鏡レベルでは確認されないが、使用時、内表面近傍に気泡を発生させる要因となる気泡核も実質的に存在せず、内表面が滑らかで、高いDF率が得られる石英ガラスルツボを製造できるシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法を提供する。

【解決手段】回転する型内に石英原料粉を供給し、ルツボ形状成形体14を形成した後、これをアーク溶融10するシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法により製造された石英ガラスルツボ14Roの内表面全体を機械研削15し、この内表面をアーク溶融18もしくは高周波プラズマ炎溶融によって再溶融することを特徴とするシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法。



【特許請求の範囲】

【請求項1】回転する型内に石英原料粉を供給し、ルツボ形状成形体を形成した後、これをアーク溶融するシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法により製造された石英ガラスルツボの内表面全体を機械研削し、この内表面をアーク溶融によって再溶融することを特徴とするシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法。

【請求項2】上記再溶融は、石英ガラスルツボ内空間を水素雰囲気もしくは水素含有雰囲気で行なうことを特徴とする請求項1に記載のシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法。

【請求項3】上記再溶融は、石英ガラスルツボの開口部を下方に向け、この下方から水素もしくは水素含有ガスを石英ガラスルツボ内空間に供給し、この石英ガラスルツボ内空間に配置された電極によりアーク溶融を行なうことを特徴とする請求項1に記載のシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明はシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法に係わり、特に内表面が平滑で高いシリコン単結晶結晶化率が得られるシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボを製造することができるシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】半導体デバイスの基板に用いられるシリコン単結晶は、一般にチョクラルスキー法(CZ法)で製造されており、このCZ法はシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボ内に多結晶シリコン原料を装填し、このシリコン原料を周囲から加熱して溶融し、上方から吊り下げた種結晶をシリコン融液に接触してから引上げるものである。

【0003】従来、石英ガラスルツボの内表面近傍に微小な気泡が存在すると、石英ガラスルツボの開口部近傍に存在する気泡が単結晶引上げ中に膨張、開裂し、Si融液中に落下したり、また、石英ガラスルツボのSi融液と接し気泡を含有する部分が急激に溶損したりすることにより、シリコン単結晶結晶化率(DF率)を低下させたりすることから、特に石英ガラスルツボの内表面の気泡を皆無にしようとする試みがなされている。

【0004】石英ガラスルツボの製造において、通常、減圧による回転アーク溶融法が行なわれており(特開平1-160836号)、この製造装置の改良や、シリカ質原料の変更等が種々検討されているが、完全な無気泡化がなされていないのが現状である。

【0005】そこで、本発明者らは他の改良施策として、上記減圧による回転アーク溶融法で製造された石英ガラスルツボの内表面の気泡を除去するために、特開昭

63-166791号に記載された発明の活用による改良を試みた。

【0006】これは石英ガラスルツボの内表面全体をHF溶液により30~50μm程度エッティングすることにより、石英ガラスルツボの内表面の気泡存在領域を削除することを意図したものである。

【0007】この方法によれば、確かに石英ガラスルツボの内表面の微小な気泡を除去することができた。しかしながら、この方法を行なうと、石英ガラスルツボの内表面は全面が均一にエッティングされるわけではなく、バラツキが生じてしまう。図4に石英ガラスルツボ31の断面31sを示せば、内周面31fは点線で示すような真円ではなく、うねった状態になってしまう。

【0008】このような石英ガラスルツボをつや出し処理として、バーナ等で加熱処理してもこのうねりを改善することができず、最終製品としても、このうねりが残ってしまう。このうねりは単結晶引上げ中のSi融液に乱流を生じしめることになり、また、局部溶損の原因にもなってしまうことが明らかになった。

【0009】また、上述のように従来の石英ガラスルツボの製造方法により製造された石英ガラスルツボでは、単結晶引上げ中に気泡や内表面の局部溶損によりDF率は低いものであった。

【0010】

【発明が解決しようとする課題】そこで、石英ガラスルツボの内表面の残留気泡を皆無にし、かつ目視や顕微鏡レベルでは確認されないが、使用時、内表面近傍に気泡を発生させる要因となる気泡核も実質的に存在せず、内表面が滑らかで、高いDF率が得られる石英ガラスルツボを製造できるシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法が要望されていた。

【0011】本発明は上述した事情を考慮してなされたもので、石英ガラスルツボの内表面の残留気泡を皆無にし、かつ目視や顕微鏡レベルでは確認されないが、使用時、内表面近傍に気泡を発生させる要因となる気泡核も実質的に存在せず、内表面が滑らかで、高いDF率が得られる石英ガラスルツボを製造できるシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法を提供することを目的とする。

【0012】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するためになされた本願請求項1の発明は、回転する型内に石英原料粉を供給し、ルツボ形状成形体を形成した後、これをアーク溶融するシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法により製造された石英ガラスルツボの内表面全体を機械研削し、この内表面をアーク溶融によって再溶融することを特徴とするシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法であることを要旨としている。

【0013】本願請求項2の発明では、上記再溶融は、石英ガラスルツボ内空間を水素雰囲気もしくは水素含有

雰囲気で行なうことを特徴とする請求項1に記載のシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法であることを要旨としている。

【0014】本願請求項3の発明では、上記再溶融は、石英ガラスルツボの開口部を下方に向け、この下方から水素もしくは水素含有ガスを石英ガラスルツボ内空間に供給し、この石英ガラスルツボ内空間に配置された電極によりアーク溶融を行なうことを特徴とする請求項1に記載のシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法であることを要旨としている。

【0015】

【発明の実施の形態】以下、本発明に係わるシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法を添付図面に基づき説明する。

【0016】図1に示すように、本発明に係わるシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法に用いられる石英ガラスルツボ製造装置1のルツボ成形用型2は、高純度化処理した多孔質カーボン型のガス透過性部材で構成されている内側部材3と、その外周に通気部4を設けて、内側部材3を保持する保持体5とから構成されている。また、保持体5の下部には、図示しない回転手段と連結されている回転軸6が固着されていて、ルツボ成形用型2を回転可能なようにして支持している。通気部4は、保持体5の下部に設けられた開口部7を介して、回転軸6の中央に設けられた排気口8と連結されており、この通気部4は、減圧機構9と連結されている。

【0017】内側部材3に対向する上部にはアーク放電用の電極10と、原料供給ノズル11と、不活性ガス供給管12と、水素ガス供給管13が設けられている。

【0018】従って、図1に示すような石英ガラスルツボ製造装置1を用い、図2に示すような製造工程に沿って石英ガラスルツボの製造を行なうには、原料供給ノズル11から高純度のシリカ粉末をルツボ成形用型2の内面部材3に供給した後(図2(a))、回転駆動源を稼働し回転軸6を矢印の方向に回転して、ルツボ成形用型2を高速で回転する。供給したシリカ粉末を遠心力によりルツボ成形用型2の内面部材3側に押圧してルツボ形状成形体14を形成する。

【0019】次に、減圧機構9の作動により内側部材3内を減圧し、さらに、不活性ガス供給管12から例えばヘリウムガスを一定量の割合で中空部14aに供給しながら、電極10に通電してルツボ形状成形体14の内側から加熱し、ルツボ形状成形体14の内表面に溶融層を形成する(図2(b))。所定時間経過後、石英ガラスルツボの外側に気泡を多数含む不透明層を形成するために、減圧機構9を調整してルツボ成形用型2内の減圧を低減し、アークを継続し、所定時間経過後、水素ガス供給管13から一定量の割合で水素ガスをルツボ形状成形体14の中空部14aに供給し、所定時間経過後、アーク通電を停止し、水素ガスの供給を止めて石英ガラスル

ツボ14Roを形成する一次製造工程は終了する(図2(c))。

【0020】さらに、上記のように一次製造工程で製造した石英ガラスルツボ14Roをガラスルツボ製造装置1から取り出し、例えば機械研削を行なう機械研削装置15により石英ガラスルツボ14Roの内表面を少なくとも100μm研削し(図2(d))、かかる後、開口部16を下方に向けて配置し、この下方から水素もしくは水素含有ガス17を石英ガラスルツボ14Ro内空間に供給し、石英ガラスルツボ14Ro内空間に配置された電極18によりアーク溶融を行なう(図2(e))。このようにして石英ガラスルツボの内表面の平坦化を行なう製造二次工程は終了して、石英ガラスルツボの全製造工程は終了して、内表面が滑らかな石英ガラスルツボ14Rが得られる(図2(f))。

【0021】上記石英ガラスルツボ14Roの内表面の平坦化を行なう製造二次工程において、石英ガラスルツボ14Roの内表面を少なくとも100μm切取る必要がある。この切取りによって、少なくともアーク溶融によって形成される内表面の微小気泡を全て除去することができる。100μm以上(好ましくは1mm以下)の研削においては、内表面全体に同じ深さだけ研削することが重要ではなく、図3(a)、(b)に示すように、石英ガラスルツボ14Roの周方向の均熱伝達のために、石英ガラスルツボ14Roの深さ方向Dの任意の断面における全体の肉厚Tもしくは透明層14tの厚さtがほぼ同一になるように研削することが重要である。

【0022】また、一次製造工程で製造した石英ガラスルツボ14Roの内表面の一部にのみ微小気泡が存在する場合にも、内表面14全体を機械研削し、内表面全体を高温加熱することが重要である。

【0023】これに対して、例えば、局部的に突起物や異物が存在し、これを局部的研削により除去した後、この除去部分を局部的加熱してガラス化した場合には、例えアーク溶融であっても除去部分に比べて外周部は比較的低温状態になり、この外周部においてSiO₂のベーパライズが生じ、凝固して内表面に付着し、ザラザラが残る。このザラザラな部分が単結晶引上げ時に結晶化して、剥離し、DF率の低下を招くおそれがある。

【0024】しかし、上述のように内表面全体を高温加熱することにより、SiO₂のベーパライズが発生せず、部分的に結晶化も生じず、単結晶引上げ時に内表面の剥離も生じない。

【0025】機械研削の手段としては、ダイヤモンド砥石を用いることが好ましく、機械的歪を石英ガラスルツボに残さないためにも、ダイヤモンド砥粒径を徐々に細かくする段階的研削をするのが好ましい。

【0026】製造二次工程における石英ガラスルツボRoの再溶融直前の内表面の表面粗さ(Ra)は0.5~5μm程度であることが好ましい。0.5μm未満まで

高精度に研削することは、かえって生産性を低下せしめ、また、 $5\mu\text{m}$ を超えると平坦度を損ねる傾向があり好ましくない。

【0027】なお、二次製造工程による石英ガラスルツボの再溶融直前に、石英ガラスルツボ 14R_0 表面の状態が機械研削を行なった状態であればよく、従って、上述した段階的研削における粗研削に代わって化学研削(エッティング)を行ない、かかる後、精密な機械研削を行ってもよい。

【0028】上述した二次製造工程で、石英ガラスルツボ 14R_0 の内表面を電極18により溶融を行なうのは、内表面のみを全体的広範囲で高温にすることが可能であり、極めて滑らかな状態にすることができるからである。酸水素バーナ溶融や雰囲気加熱等では、石英ガラスルツボの内表面のみを全体的に高温に加熱することは難しく、内表面を滑らかにすることはできない。

【0029】また、発明者らの実験では、上記酸水素バーナ溶融や雰囲気加熱よりも、高周波プラズマ炎による溶融の方が、比較的平坦な石英ガラスルツボが製造できることが確認されている。

【0030】また、二次製造工程で、水素雰囲気もしくは水素含有ガス中でアーク溶融を行なうのは、石英ガラスルツボ 14R_0 の内表面の平滑化と気泡膨張の抑制を同時に達成させることができるからである。石英ガラスルツボ全体的水素もしくは水素含有ガス雰囲気の炉内で加熱して、気泡膨張を抑制する方法では、 H_2 によって内表面が部分的にエッティングを受け、内表面がザラザラに面荒れしてしまう。

【0031】また、二次製造工程で、石英ガラスルツボ 14R_0 の開口部を下方に向け、下方から水素もしくは水素含有ガスを石英ガラスルツボ 14R_0 内空間に供給するのは、図2(e)に示すように、水素ガスが石英ガラスルツボ 14R_0 内空間に溜まり易く、気泡膨張の抑制に効果がある表層深さをより効果的に深くできるからである。また、石英ガラスルツボ 14R_0 の開口部を上方に向ける場合に比べて、石英ガラスルツボ 14R_0 の底部内表面に気泡膨張の抑制効果を確実に備えさせることができる。

【0032】

【実施例】(実施例)高純度の水晶原料を用い、上述の一次製造工程によって、開口部の内径が 540mm 、高さ 365mm であって、ストレート部の内側の透明層の厚さが 4mm で外側不透明層の厚さが 7mm である石英ガラスルツボを製造した。この石英ガラスルツボを上述二次製造工程として内表面から約 1mm をダイヤモンド砥石によって全体を機械研磨した後に、開口部を下方に向けて、石英ガラスルツボ内空間に水素ガスを供給しながら、同空間内に配置された3本の電極によって、アーク再溶融を行い、ストレート部の内側透明層の厚さが 3mm の石英ガラスルツボを製造した。

【0033】この石英ガラスルツボの内表面の表面粗さ Ra は、 $0.8\mu\text{m}$ であり、うねりのない状態であった。この石英ガラスルツボを用いCZ法により多結晶シリコン約 150kg チャージで直径8インチのシリコン単結晶インゴットを製造したところ、DF率は97%であった。

【0034】(比較例)上記実施例と同等の一次製造工程によって、同一寸法の石英ガラスルツボについて、この内空間をフッ酸溶液で満たし、室温で約16時間保持10することで、上記実施例と同様にストレート部の内側透明層の厚さが約 3mm の石英ガラスルツボを製造した。この石英ガラスルツボは内表面に大きなうねりが観察された、この石英ガラスルツボを用いCZ法により多結晶シリコン約 150kg チャージで直径8インチのシリコン単結晶インゴットを製造したところ、DF率は91%であった。

【0035】

【発明の効果】本発明に係るシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法によれば、石英ガラスルツボの内表面に残留気泡が存在せず、使用時、内表面近傍に気泡を発生させる要因となる気泡核も実質的に存在せず、内表面が滑らかで、DF率の低下がない石英ガラスルツボを製造できるシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法を提供することができる。

【0036】即ち、回転アーク溶融法により製造された石英ガラスルツボの内表面全体を機械研削し、この内表面をアーク溶融もしくは高周波プラズマ炎溶融によって再溶融するので、内表面全体を高温加熱することにより、 SiO_2 のペーパライズが発生せず、部分的に結晶化も生じず、また、内表面のみを全体的に高温にすることが可能であり、極めて滑らかな状態にすることができ、単結晶引上げ時内表面の剥離も生じず、高いDF率が得られるシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法を提供することができる。

【0037】また、再溶融は、石英ガラスルツボ内空間を水素雰囲気もしくは水素含有雰囲気で行なうので、石英ガラスルツボの内表面の平滑化と気泡膨張の抑制を同時に達成させることができる。

【0038】また、再溶融は、石英ガラスルツボの開口部を下方に向け、この下方から水素もしくは水素含有ガスを石英ガラスルツボ内空間に供給して行なうので、水素ガスが石英ガラスルツボ内空間に溜まり易く、気泡膨張の抑制に効果がある表層深さをより効果的に深くでき、また、石英ガラスルツボの開口部を上方に向ける場合に比べて、石英ガラスルツボの底部内表面に気泡膨張の抑制効果を確実に備えさせることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に係るシリコン単結晶引上用石英ガラスルツボの製造方法に用いられる製造装置の説明図。

50 【図2】本発明に係るシリコン単結晶引上用石英ガラ

スルツボの製造方法の製造工程説明図。

【図3】一般の石英ガラスルツボの断面を説明する説明図。

【図4】従来の石英ガラスルツボの断面を説明する説明図。

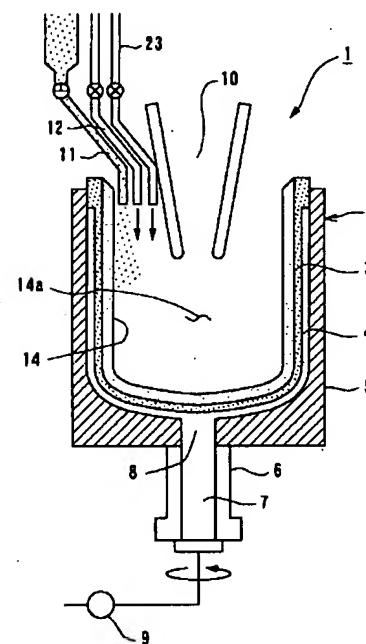
【符号の説明】

- 1 石英ガラスルツボ製造装置
- 2 ルツボ成形用型
- 3 内側部材
- 4 通気部
- 5 保持体
- 6 回転軸
- 7 開口部
- 8 排気口

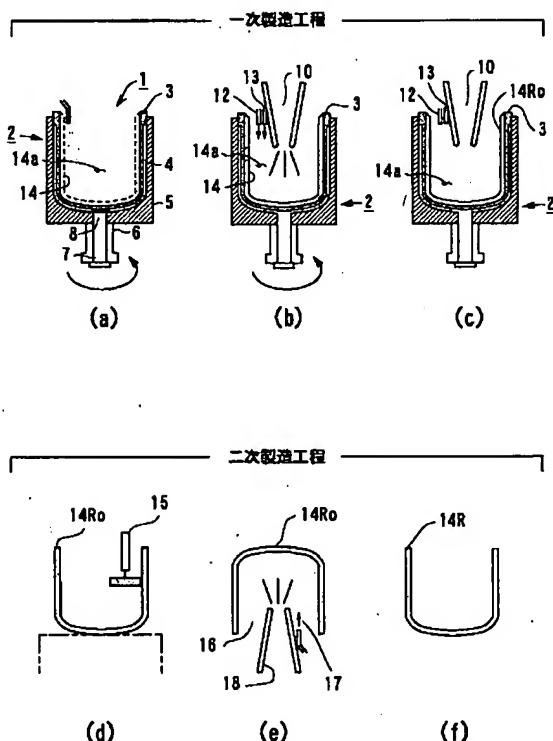
9 減圧機構

- 10 電極
- 11 原料供給ノズル
- 12 不活性ガス供給管
- 13 水素ガス供給管
- 14 ルツボ形状成形体
- 14a 中空部
- 14R₀ 石英ガラスルツボ(一次製造工程後)
- 14R 石英ガラスルツボ
- 15 機械研削装置
- 16 開口部
- 17 水素ガス
- 18 アーク電極

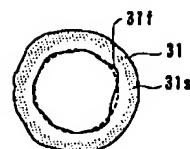
【図1】



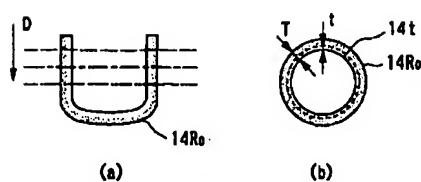
【図2】



【図4】



【図3】



フロントページの続き

(72)発明者 小畠 直之
山形県西置賜郡小国町大字小国町378番地
東芝セラミックス株式会社小国製造所内

F ターム(参考) 4G014 AH08
4G077 AA02 BA04 CF10 PD01